

19



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



11 Veröffentlichungsnummer: **0 590 270 A2**

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: **93112315.2**

51 Int. Cl.⁵: **C08G 77/26, C08G 77/388**

22 Anmeldetag: **31.07.93**

30 Priorität: **01.10.92 DE 4233021**

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
06.04.94 Patentblatt 94/14

94 Benannte Vertragsstaaten:
BE CH DE ES FR IT LI NL PT

71 Anmelder: **HÜLS AKTIENGESELLSCHAFT**

D-45764 Marl(DE)

72 Erfinder: **Standke, Burkhard, Dr.**
Burstelstrasse 2 a

D-79618 Rheinfelden(DE)

Erfinder: **Rauleder, Hartwig, Dr.**

Uhlandweg 51 a

D-79618 Rheinfelden(DE)

Erfinder: **Seller, Claus-Dietrich, Dr.**

In der Klus 10

D-79618 Rheinfelden(DE)

Erfinder: **Kötzsch, Hans-Joachim, Dr.**

Fécampweg 28

D-79618 Rheinfelden(DE)

Erfinder: **Peeters, Hermann, Dr.**

Farnweg 60

D-53721 Siegburg(DE)

54 **Organosilanpolykondensate.**

57 Es werden neue Organosilanpolykondensate beschrieben. Die neuen Verbindungen werden durch Hydrolyse von Hydrogensalzen von Aminosilanverbindungen oder durch Hydrolyse von Aminosilanen und anschließende Reaktion mit einem Alkylsalz hergestellt. Sie werden als Haftvermittler zwischen anorganischen und organischen Oberflächen eingesetzt.

EP 0 590 270 A2

Gegenstand der Erfindung sind Organosilanpolykondensate nach Anspruch 1, deren Herstellung und ihre Verwendung als Haftvermittler.

Es ist bekannt, Hydrochloride funktionalisierter Aminosilane, z.B. von 3-(N-vinylbenzyl-2-aminoethyl)-aminopropyltrimethoxysilan oder 3-(N-benzyl-2-aminoethyl)aminopropyltrimethoxysilan, als Haftvermittler zu verwenden. Über Haftvermittlung bei der Beschichtung von Metallen, vorzugsweise Kupfer und Eisen, mit Polyolefinen oder Epoxidharzen wird in den Schriften US 4902556, EP 353766 und US 4849294 berichtet. Haftvermittlung auf Glasoberflächen wird gemäß den Schriften EP 338 128, WO 8800527, US 4499152, US 4382991, US 4330444, DE 2802242 (Haftvermittler für diverse Harzsysteme auf Glasfasern) und BE 845040 (Haftvermittler für Epoxidharz auf Flachglas für verbesserte Alkaliresistenz) erreicht. Als Haftvermittler für oxidische Füllstoffe in diversen organischen Polymeren besteht ebenfalls Verwendung (JP 01/259369, EP 176062). Aus ökologischen (z.B. Verminderung des CSB-Wertes [Wert für den chemischen Sauerstoffbedarf im Abwasser]) und arbeitssicherheitstechnischen Gründen ist ein Einsatz in wäßrigen Systemen vorteilhaft. Die beschriebenen Substanzen sind jedoch nur schwer in Wasser löslich. Ohne Einsatz stabilisierender Zusätze oder erheblicher Mengen organischer Säuren ist eine wäßrige Formulierung nicht möglich und dann auch nur in geringen Konzentrationen von unter 1 % (JP 62/243624, US 4499152, US 4382991, US 4330444, DE 2802 242).

Es bestand daher das Problem, als Haftvermittler geeignete, funktionalisierte Organosilane der beschriebenen Art in wasserlöslicher Form aufzufinden.

Dieses Problem konnte durch gezielte hydrolytische Polymerisation des funktionalisierten Aminosilanhydroxysalzes $Z-Si(OR)_{3-z}R'_z$ oder durch gezielte hydrolytische Polymerisation des Aminosilans $H_2N(CH_2)_mNH(CH_2)_nSi(OR)_{3-z}R'_z$ und anschließende Funktionalisierung durch Reaktion mit einem entsprechenden funktionellen Alkylsalz unter Bildung eines wasserlöslichen Organosilanpolykondensats nach Anspruch 1 gelöst werden. Die Bedeutung der Symbole in den vorgenannten allgemeinen Formeln ist in Anspruch 1 erläutert. Die erfindungsgemäßen Organosilanpolykondensate werden auch als Polysiloxane oder oligomere bzw. polymere Siloxane bezeichnet.

Die erfindungsgemäßen Produkte weisen gegenüber den reinen funktionalisierten Aminosilanen der allgemeinen Formel III (siehe Anspruch 2) den Vorteil der Wasserlöslichkeit auf, so daß die Produkte in wäßrigen Beschichtungssystemen ohne stabilisierende Zusätze und auch in hohen Konzentrationen eingesetzt werden können.

Am Beispiel der erfindungsgemäßen Verbindung $[CH_2 = CH-C_6H_4-CH_2-NH-(CH_2)_2NH(CH_2)_3-SiO_{1,5-(a+b)/2}-(OH)_a(OCH_3)_b]_r$ ($0 < a < 3$, $0 < b < 3$, $a + b < 3$, $r > 1$) wird die Vorgehensweise erläutert:

1. Herstellung durch hydrolytische Polymerisation eines funktionellen Aminosilanhydrohalogenids:

Eine Lösung von

$CH_2 = CH-C_6H_4-CH_2-NH-(CH_2)_2NH(CH_2)_3-Si(OCH_3)_3 \cdot HCl$ in Methanol wird mit einer Wassermenge umgesetzt, die dem 0,25- bis 4-fachen (bevorzugt 1,5-fachen) molaren Siliciumgehalt des eingesetzten funktionellen Aminosilanhydrochlorids entspricht. Die hydrolytische Polymerisation ist nach einigen Stunden beendet. Das entstandene Gemisch aus oligomeren und polymeren Siloxanen im Gleichgewicht mit Silanolen ist für die Verwendung gemäß Anspruch 11 einsatzbereit.

2. Herstellung durch hydrolytische Polymerisation eines Aminosilans mit nachfolgender Funktionalisierung durch Reaktion mit einem funktionellen Alkylhalogenid:

$H_2N(CH_2)_2NH(CH_2)_3-Si(OCH_3)_3$ wird mit einer Wassermenge hydrolytisch polymerisiert, welche dem 0,25-bis 4-fachen (bevorzugt 1,5-fachen) molaren Siliciumgehalt des eingesetzten Aminosilans entspricht. Es entsteht eine viskose Flüssigkeit. Zur besseren Handhabung kann mit Methanol verdünnt werden. Die Lösung wird dabei dünnflüssig. Im Anschluß wird mit einer Stoffmenge Vinylbenzylchlorid ($CH_2 = CH-C_6H_4-CH_2-Cl$), gegebenenfalls verdünnt mit Methanol, welche der molaren Menge des eingesetzten Aminosilans entspricht, umgesetzt. Es resultiert ein Gemisch aus oligomeren und polymeren Siloxanen im Gleichgewicht mit Silanolen.

Die verwendete molare Wassermenge entspricht dem 0,25-fachen bis 4-fachen molaren Siliciumgehalt des eingesetzten Aminosilans. Bei geringeren Wassermengen wird keine vollständige Wassermischbarkeit erreicht. Bei größerer Wassermenge kommt es bei der Synthese der Hydrolysate zu Ausfällungen. Die erfindungsgemäß hergestellten Polyorganosiloxane sind in reiner Form meist hochviskos oder fest. Zur besseren Handhabung erfolgt die Herstellung in einem Lösungsmittel, bevorzugt in einem Alkohol, besonders bevorzugt in demjenigen Alkohol, der bei der Hydrolyse freigesetzt wird. Bevorzugt werden ein- oder mehrwertige, verzweigte, unverzweigte oder cyclische Alkohole mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen als Lösungsmittel verwendet.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Produkte kann in einfachen Rührgefäßen mit Dosiervorrichtung erfolgen. Vorteilhaft wird das zur Hydrolyse benötigte Wasser in die Silanlösung oder das reine Silan eindosiert. Die Zugabegeschwindigkeit des Wassers ist unkritisch, sofern die angegebenen Konzentrations-

bereiche eingehalten werden und die bei der Hydrolyse entstehende Wärme abgeführt wird. Reaktionstemperaturen über 100 °C sind zu vermeiden, sofern das Produkt Alkenylgruppen enthält (Polymerisationsgefahr). Wird bei der Herstellung der erfindungsgemäßen Produkte zunächst das Aminosilan durch Zugabe von Wasser hydrolytisch polymerisiert, so erfolgt die Umsetzung zum funktionalisierten Aminopolysiloxan vorteilhaft durch Zudosieren des entsprechenden funktionellen Alkylsalzes, bevorzugt des funktionellen Alkylchlorids, in das zuvor hergestellte Aminopolysiloxan. Um hochviskose Produkte zu vermeiden und zum Abfangen lokaler Temperaturspitzen (exotherme Reaktion) kann das funktionelle Alkylchlorid mit einem Lösungsmittel verdünnt werden. Vorteilhafterweise verwendet man als Lösungsmittel denjenigen Alkohol, der bei der hydrolytischen Polymerisierung frei wird. Gegebenenfalls können beide Reaktionsschritte in einer Anlage stattfinden. Konzentration der funktionellen Aminopolysiloxane und Viskosität der Lösung können durch destillative Entfernung des gegebenenfalls eingesetzten Lösungsmittels oder durch Verdünnen mit Lösungsmittel eingestellt werden.

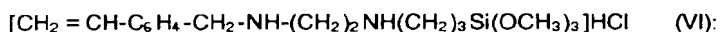
Die erfindungsgemäßen funktionellen Aminopolysiloxane oder deren Lösungen sind in jedem Verhältnis mit Wasser mischbar, ohne daß eine sofortige Trübung oder Ausfällung erfolgt. Langzeitstabilität verdünnter wäßriger Lösungen kann gegebenenfalls durch Einstellung des pH-Wertes der Lösung auf Werte < 4,5 durch Zugabe ausreichender Menge Säure, bevorzugt Essigsäure, erreicht werden.

Die erfindungsgemäßen Produkte eignen sich als Haftvermittler zwischen anorganischen und organischen Oberflächen, insbesondere bei der Verstärkung organischer Polymere mit anorganischen, vorzugsweise oxidischen, Füllstoffen, Glasfasern oder metallischen Partikeln sowie bei der Beschichtung anorganischer Oberflächen, vorzugsweise von Metallen, Metalloxiden oder Glas, mit organischen Polymeren.

Die Erfindung wird nachfolgend anhand der Beispiele erläutert.

Beispiel 1

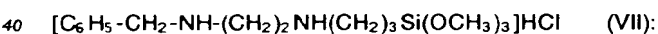
Herstellung eines funktionalisierten Aminopolysiloxans durch hydrolytische Polymerisation von



In einem beheizbaren 2-l-Dreihalskolben, ausgerüstet mit Stickstoffüberlagerung, Destillationsvorrichtung und Tropftrichter, werden 750 g einer 50 Gew.-%-igen Lösung von VI (Siliciumgehalt 3,74 Gew.-%) in Methanol vorgelegt. Unter Rühren werden anschließend 27 g Wasser (entsprechend 1,5 mol Wasser pro mol eingesetztes Silicium) langsam eindosiert. Anschließend werden bei Umgebungsdruck 27 g Methanol destillativ aus dem Reaktionsgemisch entfernt. Danach wird die Lösung ca. 3 Stunden auf 60 °C erhitzt. Die Lösung weist einen Siliciumgehalt von 3,74 Gew.-% auf.

Beispiel 2

Herstellung eines funktionalisierten Aminopolysiloxans durch hydrolytische Polymerisation von



In einem beheizbaren 2-l-Dreihalskolben, ausgerüstet mit Stickstoffüberlagerung, Destillationsvorrichtung und Tropftrichter, werden 697 g einer 50 Gew.-%-igen Lösung von VII in Methanol (4,01 Gew.-% Siliciumgehalt) vorgelegt. Unter Rühren werden anschließend 27 g Wasser (entsprechend 1,5 mol Wasser pro mol eingesetztes Silicium) langsam eindosiert. Bei Umgebungsdruck werden anschließend 27 g Methanol destillativ aus dem Reaktionsgemisch entfernt. Danach wird die Lösung ca. 3 Stunden auf ca. 60 °C erhitzt. Die Lösung weist einen Siliciumgehalt von 4,01 Gew.-% auf.

Beispiel 3

Herstellung eines funktionalisierten Aminopolysiloxans aus hydrolytisch polymerisiertem $\text{NH}_2-(\text{CH}_2)_2\text{NH}-(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ und Umsetzung mit $\text{CH}_2 = \text{CH}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{CH}_2-\text{Cl}$.

In einem beheizbaren 1-l-Dreihalskolben, ausgerüstet mit Stickstoffüberlagerung, Rückflußkühler und Tropftrichter, werden 222 g Aminoethylaminopropyltrimethoxysilan vorgelegt. Unter Rühren werden anschließend 27 g Wasser (entsprechend 1,5 mol pro mol eingesetztes Silicium) langsam eindosiert. Das Reaktionsgemisch erwärmt sich dabei auf ca. 60 °C. Die Temperatur wird durch Heizen 1 Stunde gehalten. Danach werden 105 g Methanol zugefügt. Im Anschluß werden 152,5 g Vinylbenzylchlorid, gemischt mit 104,5 g Methanol, unter Rühren langsam eindosiert. Die Temperatur wird durch Kühlen (während des Eindosierens)

und nachfolgendes Heizen ca. 3 Stunden auf 64 °C gehalten. Nach Abkühlung wird mit 138 g Methanol auf einen Siliciumgehalt von 3,74 Gew.-% verdünnt.

Beispiel 4

Herstellung eines funktionalisierten Aminopolysiloxans aus hydrolytisch polymerisiertem $\text{NH}_2-(\text{CH}_2)_2\text{NH}-(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OCH}_3)_3$ und Umsetzung mit $\text{C}_6\text{H}_5-\text{CH}_2-\text{Cl}$.

In einem beheizbaren 1-l-Dreihalskolben, ausgerüstet mit Stickstoffüberlagerung, Rückflußkühler und Tropftrichter, werden 222 g Aminoethylaminopropyltrimethoxysilan vorgelegt. Unter Rühren werden anschließend 27 g Wasser (entsprechend 1,5 mol pro mol eingesetztes Silicium) langsam eindosiert. Das Reaktionsgemisch erwärmt sich dabei auf ca. 60 °C. Die Temperatur wird durch Heizen 1 Stunde gehalten. Danach werden 92 g Methanol zugefügt. Im Anschluß werden 126,5 g Benzylchlorid, gemischt mit 91,5 g Methanol, unter Rühren langsam eindosiert. Die Temperatur wird durch Kühlen (während des Eindosierens) und nachfolgendes Heizen ca. 3 Stunden auf 64 °C gehalten. Nach Abkühlung wird mit 138 g Methanol auf einen Siliciumgehalt von 4,01 Gew.-% verdünnt.

Beispiel 5

Herstellung einer wäßrigen Lösung des Produktes aus Beispiel 1: In einem Rührgefäß werden 92 g Wasser vorgelegt und unter Rühren mit 8 g des Produktes aus Beispiel 1 versetzt. Es resultiert eine klare Lösung mit einem Siliciumgehalt von 0,32 Gew.-%. Durch Ansäuern mit Essigsäure auf einen pH-Wert von 4 kann eine mit der Zeit einsetzende Trübung vermieden werden.

Beispiel 6

Herstellung einer wäßrigen Lösung des Produktes aus Beispiel 2: In einem Rührgefäß werden 92 g Wasser vorgelegt und unter Rühren mit 8 g des Produktes aus Beispiel 2 versetzt. Es resultiert eine klare Lösung mit einem Siliciumgehalt von 0,30 Gew.-%. Durch Ansäuern mit Essigsäure auf einen pH-Wert von 4 kann eine mit der Zeit einsetzende Trübung vermieden werden.

Beispiel 7

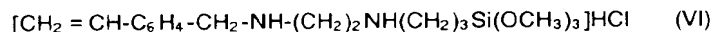
Herstellung einer wäßrigen Lösung des Produktes aus Beispiel 3: In einem Rührgefäß werden 92 g Wasser vorgelegt und unter Rühren mit 8 g des Produktes aus Beispiel 3 versetzt. Es resultiert eine klare Lösung mit einem Siliciumgehalt von 0,32 Gew.-%. Durch Ansäuern mit Essigsäure auf einen pH-Wert von 4 kann eine mit der Zeit einsetzende Trübung vermieden werden.

Beispiel 8

Herstellung einer wäßrigen Lösung des Produktes aus Beispiel 4: In einem Rührgefäß werden 92 g Wasser vorgelegt und unter Rühren mit 8 g des Produktes aus Beispiel 4 versetzt. Es resultiert eine klare Lösung mit einem Siliciumgehalt von 0,30 Gew.-%. Durch Ansäuern mit Essigsäure auf einen pH-Wert von 4 kann eine mit der Zeit einsetzende Trübung vermieden werden.

Beispiel 9 (Vergleichsbeispiel)

Löseversuch von



in Wasser: In einem Rührgefäß werden 92 g Wasser vorgelegt und unter Rühren mit 8 g einer 50 Gew.-%igen Lösung von VI in Methanol (Si-Gehalt: 3,74 Gew.-%) versetzt. Es treten sofort Ausfällungen auf. Eine homogene Lösung ist nicht erzielbar. Der theoretische Siliciumgehalt der Gesamtlösung beträgt 0,30 Gew.-%.

Beispiel 10 (Vergleichsbeispiel)

Löseversuch von

5 $[C_6H_5-CH_2-NH-(CH_2)_2NH(CH_2)_3Si(OCH_3)_3]HCl$ (VII)

in Wasser: In einem Rührgefäß werden 92 g Wasser vorgelegt und unter Rühren mit 8 g einer 50 Gew.-%igen Lösung von VII in Methanol (Si-Gehalt: 4,01 Gew.-%) versetzt. Es resultiert eine inhomogene, trübe Lösung. Der theoretische Siliciumgehalt der Gesamtlösung beträgt 0,32 Gew.-%.

10

Beispiel 11

Verwendung als Glasfaserschlichte

15 Entsprechend DIN 53390 wird ein Bündel wassergeschlichteter Glasfasern (Vetrotex EC 10, 120 tex) in einer Silanschlichte, hergestellt durch Einrühren des Organosilans bzw. Organosilanpolykondensats gemäß Tabelle 1 in Wasser, das mit Essigsäure auf einen pH-Wert von 3,5 bis 4,5 eingestellt war, intensiv getränkt und anschließend 1 Stunde bei 80 °C getrocknet. Das Glasfaserbündel wird in ein mit Harz gefülltes kalibriertes rundes Glasrohr mit dem Innendurchmesser 0,4 cm und der Länge 75 cm gezogen und
20 anschließend mit dem Harz gehärtet. Der Anteil der Glasfasern beträgt 60 Gew.-%. Die geformten Glasfaserverbund-Rundstäbe werden aus dem Glasrohr entfernt und nachgehärtet. Die ausgehärteten Stäbe werden auf eine Länge von je 5 cm geschnitten und zur einen Hälfte unbelastet, zur anderen Hälfte nach einer Kochwasserbelastung von 72 Stunden auf die Biegefestigkeit untersucht.

25

30

35

40

45

50

55

Tabelle 1

Organosilan	UP-Harz ^{a)}		EP-Harz ^{b)}	
	unbelastet	Biegefestigkeit [N/mm ²] belastet	unbelastet	belastet
kein Silan	7000	2100	8200	2300
Reaktionsprodukt von DYNASYLAN DAMO ^{c)} mit Benzylchlorid			8300	6200
Partialkondensat des Reaktionsprodukts von DYNASYLAN DAMO mit Benzylchlorid			8700	6500
Reaktionsprodukt von DYNASYLAN DAMO mit Vinylbenzylchlorid	9100	5100	8500	6300
Partialkondensat des Reaktionsprodukts von DYNASYLAN DAMO mit Vinylbenzylchlorid	11200	5000	8900	6250
DYNASYLAN DAMO			8500	6100

a) Palatal P6 (BASF), Härtung mit Dibenzoylperoxid

b) Araldit BY 5022 / HY 5022/1 (Ciba-Geigy)

c) DYNASYLAN DAMO: N-Aminoethyl-3-aminopropyltrimethoxysilan

Die Versuche belegen, daß die Partialkondensate den Stammbverbindungen gleichwertig oder sogar überlegen sind.

Beispiel 12

Verwendung als Füllstoffbeschichtung

- 5 In einem Schnellmischer werden 500 Gew.-Teile Cristobalitmehl (SF 3000, Quarzwerke GmbH) durch Zudosieren von 2,5 Gew.-Teilen (0,5 %) Organosilan bzw. Organosilanpartialkondensat gemäß Tab. 2 beschichtet und anschließend 0,5 Stunden bei 80 °C erhitzt. Nach homogenem Einrühren von 156 Gew.-Teilen ggf. beschichtetem Cristobalitmehl in 144 Gew.-Teilen UP-Harz (Vestopal 155, HÜLS AG) - Füllgrad: 52 %- und Temperierung auf 20 °C wird die Viskosität mit einem Brookfieldviskosimeter gemessen.
- 10 Anschließend werden 2,9 g Dibenzoylperoxid und 1,4 g Cobaltbeschleuniger (1 %) zugegeben, die Mischung homogenisiert, entgast und in eine Metallform gegossen, aus der nach 2 Stunden Härtung bei Raumtemperatur und 2 Stunden Nachhärtung bei 110 °C Platten der Größe 20 x 20 x 0,4 cm erhalten werden. Aus den Platten werden Prüfkörper der Maße 0,6 x 0,4 x 5 cm geschnitten, die zur einen Hälfte unbelastet, zur anderen Hälfte nach einer Kochwasserbelastung von 16 Stunden auf die Biegefestigkeit
- 15 geprüft werden.

20

25

30

35

40

45

50

55

Tabelle 2

Organosilan	Viskosität [mPaxs]	Biegefestigkeit[N/mm ²] unbelastet belastet
kein Silan	13800	65,3 47,5
Umsetzungsprodukt von DYNASYLAN DAMO mit Vinylbenzylchlorid	3600	100 70
Partialkondensat des Umsetzungsprodukts von DYNASYLAN DAMO mit Vinylbenzylchlorid	3600	97 68

Die Versuche belegen, daß die Partialkondensate den Stammverbindungen gleichwertig sind.

55 Patentansprüche

1. Organosilanpolykondensate der allgemeinen Formel I $(Z-SiO_{[1,5-(a+b)/2]}(OH)_a(OR)_bR'_z)_r$ (I),
in welcher bedeuten:

$0 < a < 3$, $0 < b < 3$, $(a + b + z) < 3$, $z < 1$, $r > 1$;

R, R': Alkylrest mit einer Kohlenstoffzahl von 1 bis 8,

Z: Organischer Rest der allgemeinen Formel II

$-(CH_2)_n(NH)_cR'_d(CH_2)_m(NH)_eR''_f.HX_{(f+d)}$ (II) n, m, p, q: Ganze Zahl von 1 bis 8, $c < 1$, $d < 1$, $e < 2$, $f < 2$,
 5 $c + d = 1$, $e + f = 2$,

X: anorganischer oder organischer Säurerest,

R': $-(CH_2)_pAr^1$,

R'': $-(CH_2)_qAr^2$ und

Ar¹, Ar²: Aryl-, Alkyl- oder Alkenylrest.

10

2. Verfahren zur Herstellung von Organosilanpolykondensaten nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Herstellung durch Hydrolyse von Verbindungen der allgemeinen Formel $Z-Si(OR)_{3-z}R'_z$ (III) erfolgt.

15

3. Verfahren zur Herstellung von Organosilanpolykondensaten nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Herstellung durch Hydrolyse von Verbindungen der allgemeinen Formel $H_2N(CH_2)_mNH(CH_2)_nSi(OR)_{3-z}R'_z$ (IV) und nachfolgende Reaktion des Kondensats mit Verbindungen der allgemeinen Formel $X-R^1$ (V) erfolgt.

20

4. Verfahren zur Herstellung von Organosilanpolykondensaten nach Anspruch 2 oder 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß zum Einstellen der Viskosität ein Lösungsmittel verwendet wird.

25

5. Verfahren zur Herstellung von Organosilanpolykondensaten nach Anspruch 4, **dadurch gekennzeichnet**, daß als Lösungsmittel ein- oder mehrwertige, verzweigte, unverzweigte oder cyclische Alkohole mit einer Kohlenstoffzahl von 1 bis 18 verwendet werden.

30

6. Verfahren zur Herstellung von Organosilanpolykondensaten nach Anspruch 2 oder 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß man zur Hydrolyse eine molare Wassermenge verwendet, welche dem 0,25- bis 4-fachen molaren Siliciumgehalt der eingesetzten Aminoverbindung entspricht.

35

7. Verfahren nach Anspruch 2, **dadurch gekennzeichnet**, daß R¹ und/oder R² ein Benzyl- oder Vinylbenzylrest ist.

40

8. Verfahren nach Anspruch 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß die zur Reaktion verwendete Alkylverbindung Vinylbenzylchlorid oder Benzylchlorid ist.

45

9. Verfahren nach Anspruch 2 oder 3, **dadurch gekennzeichnet**, daß $n = 3$ und $m = 2$ ist.

50

10. Verfahren zur Stabilisierung verdünnter wäßriger Lösungen von Organosilanpolykondensaten nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet**, daß der pH-Wert dieser Lösungen durch Säurezugabe auf einen Wert von weniger als 4,5 eingestellt wird.

55

11. Verwendung der Organosilanpolykondensate nach Anspruch 1 als Haftvermittler zwischen anorganischen und organischen Oberflächen, insbesondere bei der Verstärkung organischer Polymere mit anorganischen, vorzugsweise oxidischen, Füllstoffen, Glasfasern oder metallischen Partikeln, oder bei der Beschichtung anorganischer Oberflächen, vorzugsweise von Metallen, Metalloxiden oder Glas, mit organischen Polymeren.